

EXPRESS MAIL NO.: EV335857106US

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Application of: Song *et al.*

Group Art Unit: To be assigned

Serial No.: To Be Assigned

Examiner: To be assigned

Filed: October 10, 2003

Attorney Docket No.: 11281-013-999

For: NANO CARBON BALL FOR
DEODORIZATION

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT


Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

In the above-identified application, Applicants respectfully submit three certified priority documents of Korean Patent Application No. 10-2002-0084983 filed on December 27, 2002, Korean Patent Application No. 10-2002-0085851 filed on December 28, 2002 and Korean Patent Application No. 10-2002-0085852 filed on December 28, 2002.

Respectfully submitted,

Date October 10, 2003


Yeahsil Moon (Reg. No. 52,042)
PENNIE & EDMONDS LLP
1155 Avenue of the Americas
New York, NY 10019
(212) 790-9090

For: Anthony M. Insogna (Reg. No. 35,203)
PENNIE & EDMONDS LLP
12750 High Bluff Drive - Suite 300
San Diego, CA 92130
(858) 314-1200

대한민국특허청
KOREAN INTELLECTUAL
PROPERTY OFFICE

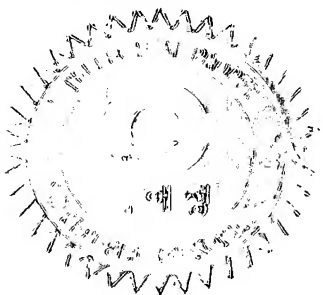
별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto
is a true copy from the records of the Korean Intellectual
Property Office.

출원번호 : 10-2002-0084983
Application Number

출원년월일 : 2002년 12월 27일
Date of Application DEC 27, 2002

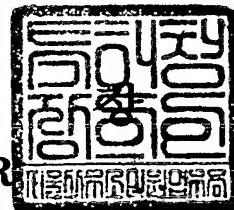
출원인 : 주식회사 엘지생활건강
Applicant(s) LG HOUSEHOLD & HEALTH CARE LTD.



2003 08 04 일
 년 월

특 허 청

COMMISSIONER



【서지사항】

【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2002. 12. 27
【발명의 명칭】	아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 카본 나노볼
【발명의 영문명칭】	Deodorant Carbon Nano-ball Using Acrylonitrile As A Carbon Precursor
【출원인】	
【명칭】	주식회사 엘지생활건강
【출원인코드】	1-2001-013334-8
【대리인】	
【성명】	조인제
【대리인코드】	9-1999-000606-6
【포괄위임등록번호】	2001-038587-1
【발명자】	
【성명의 국문표기】	송준엽
【성명의 영문표기】	SONG, Jun Yeob
【주민등록번호】	721013-1162824
【우편번호】	440-709
【주소】	경기도 수원시 장안구 조원동 한일타운아파트 133-502
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김종윤
【성명의 영문표기】	KIM, Jong Yun
【주민등록번호】	690915-1030324
【우편번호】	305-728
【주소】	대전광역시 유성구 전민동 세종아파트 110-104
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	박승규
【성명의 영문표기】	PARK, Seung Kyu
【주민등록번호】	630524-1565629

【우편번호】 305-728
【주소】 대전광역시 유성구 전민동 세종아파트 109-902
【국적】 KR
【발명자】
【성명의 국문표기】 유종성
【성명의 영문표기】 YU, Jong Sung
【주민등록번호】 590819-1046925
【우편번호】 302-776
【주소】 대전광역시 서구 둔산2동 향촌아파트 103-903
【국적】 KR
【발명자】
【성명의 국문표기】 박용기
【성명의 영문표기】 PARK, Yong Ki
【주민등록번호】 650405-1226531
【우편번호】 305-755
【주소】 대전광역시 유성구 어은동 한빛아파트 119-302
【국적】 KR
【발명자】
【성명의 국문표기】 이철위
【성명의 영문표기】 LEE, Chul Wee
【주민등록번호】 571009-1162015
【우편번호】 305-345
【주소】 대전광역시 유성구 신성동 하나아파트 107-603
【국적】 KR
【취지】 특허법 제42조의 규정에 의하여 위와 같이 출원합니다. 대리인
 조인제 (인)
【수수료】
【기본출원료】 11 면 29,000 원
【가산출원료】 0 면 0 원
【우선권주장료】 0 건 0 원
【심사청구료】 0 항 0 원
【합계】 29,000 원
【첨부서류】 1. 요약서·명세서(도면)_1통

【요약서】**【요약】**

본 발명은 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 카본 나노볼에 관한 것으로, 아크릴로니트릴 모노머를 카본 전구체로 이용하여 코어-셸구조체를 제조한후 이를 탄화시켜 카본 나노볼을 제조하며, 소취 성능을 가지는 금속이온을 카본 나노볼 중량에 대하여 0.01 내지 20 중량부의 양으로 침착시킨 소취용 침착 카본 나노볼을 제공함으로써, 기존의 디비닐벤젠 모노머를 이용한 카본 전구체를 이용하여 제조한 카본 나노볼과 성능에서 뒤쳐지지 않으면서도 저비용으로 대량 생산 할 수 있는 효과가 있다.

【대표도】

도 1

【색인어】

카본 나노볼, 금속이온 침착 카본 나노볼, 아크릴로니트릴 모노머, 카본 전구체, 탄소재, 탈취, 소취

【명세서】**【발명의 명칭】**

아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 카본 나노볼{Deodorant Carbon Nano-ball
Using Acrylonitrile As A Carbon Precursor}

【도면의 간단한 설명】

도 1은 본 발명에 따른 탈취 및 소취용 카본 나노볼의 제조 방법을 나타낸 모식도이다.

도면의 주요한 부호에 대한 간단한 설명

I: 실리카 코어 합성단계

II: 메조포러스 셀 구조 합성단계

III: 메조포러스 셀에 아크로니트릴 모노머 주입단계

IV: 중합반응 단계

V: 탄화 단계

VI: 실리카 부식 단계

VII: 소취물질 침착단계

【발명의 상세한 설명】**【발명의 목적】****【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】**

<10> 본 발명은 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 카본 나노볼에 관한 것이다.

더욱 상세하게는 아크릴로니트릴 모노머를 카본 전구체로 이용하여 코어-셀구조체를 제조한후

이를 탄화시켜 제조하는 카본 나노볼 및 상기 카본 나노볼에 금속이온등을 침착시켜 소취성을 향상시킨 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 카본 나노볼에 관한 것이다.

- <11> 사람이 머물 수 있는 일정한 공간, 예를들면 화장실, 거실, 부엌, 방, 창고 등의 실내에서의 쾌적한 생활을 위해서는 실내의 악취를 소거할 필요가 있는바, 이를 위하여 종래부터 여러종류의 다양한 방법들이 알려져 왔다. 그중 가장 포괄적이라고 할 수 있는 것이 방향제품인데, 이러한 방향제품은 공기에 방향을 부여하는 순수하고 좁은 의미의 방향제 및 실내의 악취를 소거하는 광의의 소취제품 즉, 악취를 물리적 작용으로 제거 또는 완화하는 탈취제, 악취를 화학적, 생물학적 작용등으로 제거 또는 완화하는 소취제, 그리고 악취를 다른 방향으로 대체하는 방취제로 분류할 수 있으며, 상용되는 제품에 있어서는 서술한 여러 기능이 복합적으로 적용될 수 있다.
- <12> 이중에서 소취제 및 탈취제로서는 대표적으로 목초액, 숯 및 금속이온등이 알려져있다.
- <13> 숯은 가장 널리 사용되는 재료로서 제조가 용이하고, 비용이 저렴한 장점이 있으나, 소취성능이 그다지 높지 않아 효과적인 악취제거에는 무리가 있었다.
- <14> 목초액은 탈취 및 소취 목적으로 많이 사용되었는데, 이는 유기화합물로서 옛부터 농가의 토지 개량제, 생장 촉진제, 동물사료 첨가제, 가축분뇨 탈취제 및 의약 산업용으로 다양하게 사용되고 있으나 품질과 사용량에 있어서 그 성능이 미약한 문제점이 있었다.
- <15> 금속이온은 전이금속이온으로서 화학적인 반응을 통해 냄새를 제거하는 소취성능에 있어서 뛰어난 장점이 있어서 앞으로 그 적용가능성이 기대되나, 현재까지 금속이온을 운반하는 효과적인 운반체의 개발이 미비하여 소취제로서는 널리 이용되지 못하고 있는 문제점이 있었다.

<16> 그러나 기존의 카본 나노볼은 디비닐벤젠 모노머를 카본 전구체로 이용하여 침착 카본 나노볼을 제조하는데 이는 원료의 가격이 상당히 높아 보편화 및 대량생산에 있어서 제약을 받는 단점이 있어 이를 실제로 소취제에 적용하기에 무리가 있었다.

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

<17> 상기와 같은 문제점을 해결하기 위하여 본 발명은, 아크릴로니트릴이 카본 전구체로 이용되는 카본 나노볼을 제공하는 것을 목적으로 한다.

<18> 본 발명의 다른 목적은 소취성능을 가지는 금속이온을 상기 카본 나노볼에 침착시켜 제조되는 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 침착 카본 나노볼을 제공하는 것을 목적으로 한다.

<19> 본 발명의 상기 목적 및 기타 목적들은 하기 설명되는 본 발명에 의하여 모두 달성될 수 있다.

【발명의 구성 및 작용】

<20> 상기 목적을 달성하기 위하여 본 발명은,

<21> 코어-셸 구조를 갖는 카본 나노볼에 있어서, 카본 전구체로서 아크릴로니트릴이 이용되는 것을 특징으로 하는 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 카본 나노볼을 제공한다.

<22> 상기 카본 나노볼은 지름이 10 내지 1000 nm인 코어 및 10 내지 500 nm의 두께의 셸로 이루어졌고, 0.1 내지 20 nm 크기의 미세구멍을 갖을 수 있다.

<23> 또한 본 발명은 상기 카본 나노볼에 대하여 소취 성능을 가지는 금속이온이 카본 나노볼 중량에 대하여 0.01 내지 20 중량부의 양으로 침착되는 것을 특징으로 하는 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 침착 카본 나노볼을 제공한다.

- <24> 상기 소취 성능을 가지는 금속이온은 전이금속 이온으로서 구리(Cu), 철(Fe), 망간(Mn), 니켈(Ni), 코발트(Co), 은(Ag), 금(Au), 바나듐(V), 루테튬(Ru), 티타늄(Ti), 크롬(Cr), 아연(Zn), 팔라듐(Pd), 전이 금속 산화물, 브롬화 나트륨(NaBr), 요오드화 나트륨(NaI), 브롬화 칼륨(KBr), 요오드화 칼륨(KI), 요오드산 칼륨(KIO₃) 및 이들의 혼합물로 이루어지는 군으로 부터 1 이상 선택될 수 있다.
- <25> 이하 본 발명에 대하여 상세히 설명하면 다음과 같다.
- <26> 본 발명의 첨착 카본 나노볼을 제조하는 공정은 도면 1의 공정에 따라 다음과 같이 합성한다.
- <27> 먼저 구형의 실리카 또는 고분자 핵을 합성(I)하고 여기에 계면활성제와 테트라에톡시실란을 계속해서 투입, 반응시켜 실리카 외부 껍질을 합성한 후 이를 소성하여 실리카 외부 껍질을 다공성 형태로 만든다(II).
- <28> 이 다공성 껍질의 구멍 속으로 아크릴로니트릴 모노머를 투입(III)한 후 중합(IV)시켜 고분자가 함유된 실리카 코어-셸 구조체를 만든다. 이를 탄화(V) 시켜 고분자를 탄소로 변환시킨 후 이를 불산이나 가성소다 용액으로 실리카를 녹여내어(VI) 카본 나노볼을 제조한다. 이렇게 제조된 카본 나노볼에 마지막 단계로 소취 물질들을 적어도 한가지 이상 첨착한다(VII).
- <29> 이하 하기의 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 상세히 설명하지만, 본 발명의 범위가 실시예에 한정되는 것은 아니다.
- <30> [실시예 1] 카본나노볼의 제조
- <31> <실리카 코어-셸의 제조단계>

- <32> 에탄올 1000 ml, 증류수 80 ml, 28% 암모니아수 40 ml를 반응기에 넣고 25 °C에서 250 rpm으로 교반하여 혼합용액을 만들었다. 이 혼합용액 700 ml에 테트라에톡시실란 (tetraethoxysilane) 37.5 ml를 넣고 4시간동안 반응시켜 실리카 핵을 합성하였다.
- <33> 여기에 테트라에톡시실란 36.88 ml, 옥타데실트리메톡시실란 (octadecyltrimethoxysilane)의 혼합용액을 11시간 동안 천천히 투입하여 실리카 핵의 외부 겹질을 성장시켰다. 이를 필터, 건조, 소성 등을 거쳐 다공성의 외부겹질을 갖는 실리카 코어-셸을 제조하였다.
- <34> <아크릴로니트릴 모노머 주입 및 중합단계>
- <35> 상기 다공구조의 실리카 코어-셸 1g을 아크릴로니트릴 모노머 6g과 2,2-아조비스이소부티로니트릴 (2,2-azobisisobutyronitrile) 0.06g의 혼합액에 함침시켜 혼합액이 다공구조 내로 스며들게 만든 후 적당량의 혼합액을 제거하고 70 °C에서 6시간 동안 중합시켰다.
- <36> <탄화 및 실리카 부식단계>
- <37> 상기 중합단계를 거친 후 이를 1000 °C의 질소 분위기 하에서 7시간 탄화시킨 후 불산 수용액이나 가성소다 용액으로 실리카를 녹여내고 이를 여과, 건조하여 카본 나노볼을 제조하였다.
- <38> [실시예 2] 소취용 첨착 카본 나노볼의 제조
- <39> <금속이온 첨착 단계>
- <40> 실시예 1에서 준비된 카본 나노볼에 금속이온을 첨착하기 위하여 카본 나노볼 적당량을 염화구리 (Cu(II)Cl₂), 염화망간(Mn(II)Cl₂), 염화 코발트 (Co(II)Cl₂), 염화 니켈(Ni(II)Cl₂), 염화철(Fe(III)Cl₃), 염화아연 (Zn(II)Cl₂), 요오드화 아연(Zn(II)I₂), 염

화바나듐($V(III)Cl_3$), 요오드화 칼륨(KI), 요오드산 칼륨(KIO_3), 브롬화 나트륨(NaBr), 요오드화 나트륨(NaI), 브롬화 칼륨(KBr), 질산은($AgNO_3$), 염화금($Au(III)Cl_3$), 염화루테튬($Ru(III)Cl_3$), 염화티타늄($Ti(II)Cl_2$), 염화크롬($Cr(II)Cl_3$), 염화파라듐($Pd(II)Cl_2$) 등의 1N 수용액 중 적어도 한 가지 이상의 물질을 선택하여 함침 시켜 상온에서 2 내지 3 일 동안 숙성시킨 후, 여과 과정을 거쳐 70 내지 110 °C에서 건조 시켰다. 열적으로 활성화가 필요한 경우는 고온 처리과정을 거쳤다.

<41> 이상의 결과로 본 발명에 따른 카본 나노볼은 디비닐벤젠 모노머를 카본 전구체로 사용한 카본 나노볼보다 적은 비용으로 동등의 효과를 나타내는 카본 나노볼을 제작하였다.

【발명의 효과】

<42> 이상에서 설명한 바와 같이 본 발명에 의한 아크릴로니트릴 카본 전구체를 이용한 탈취용 침착 카본 나노볼은 가격면에 있어서 기존의 디비닐벤젠을 카본 전구체로 이용하여 제조한 침착 카본 나노볼의 성능과 비교하였을 경우, 가격이 디비닐벤젠에 비해 저렴하기 때문에 침착 카본 나노볼의 제조에 있어서 원가 절감의 효과있는 유용한 발명인 것이다.

<43> 상기에서 본 발명은 기재된 구체예를 중심으로 상세히 설명되었지만, 본 발명의 범주 및 기술사상 범위 내에서 다양한 변형 및 수정이 가능함은 당업자에게 있어서 명백한 것이며, 이러한 변형 및 수정이 첨부된 특허청구범위에 속하는 것도 당연한 것이다.

【특허청구범위】**【청구항 1】**

코어-셸 구조를 갖는 카본 나노볼에 있어서,

카본 전구체로서 아크릴로니트릴이 이용되는 것을 특징으로 하는 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 카본 나노볼.

【청구항 2】

제 1항에 있어서,

상기 카본 나노볼은 지름이 10 내지 1000 nm인 코어 및 10 내지 500 nm의 두께의 셸로 이루어졌고, 0.1 내지 20 nm 크기의 미세구멍을 갖는 것을 특징으로 하는 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 카본 나노볼.

【청구항 3】

제 1항의 카본 나노볼에 대하여 소취 성능을 가지는 금속이온이 카본 나노볼 중량에 대하여 0.01 내지 20 중량부의 양으로 침착되는 것을 특징으로 하는 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 침착 카본 나노볼.

【청구항 4】

제 3항에 있어서,

상기 소취 성능을 가지는 금속이온은 전이금속 이온으로서 구리(Cu), 철(Fe), 망간(Mn), 니켈(Ni), 코발트(Co), 은(Ag), 금(Au), 바나듐(V), 루테튬(Ru), 티타늄(Ti), 크롬(Cr), 아연(Zn), 팔라듐(Pd), 전이 금속 산화물, 브롬화 나트륨(NaBr), 요오드화 나트륨(NaI), 브롬 칼륨(KBr), 요오드화 칼륨(KI), 요오드산 칼륨(KIO₃) 및 이들의 혼합물로 이루어지는 군으로부터

1 이상 선택되는 것을 특징으로 하는 아크릴로니트릴을 카본 전구체로 이용한 소취용 침착 카본 나노볼.

【도면】

【도 1】

